



SPF ECONOMIE, P.M.E.,
CLASSES MOYENNES & ENERGIE

NUMERO DE PUBLICATION : 1014376A5

NUMERO DE DEPOT : 2001/0606

Classif. Internat. : A61K

Date de délivrance le : 02 Septembre 2003

Le Ministre de l'Economie,

Vu la Convention de Paris du 20 Mars 1883 pour la Protection de la propriété intellectuelle;

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l'arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 20 Septembre 2001 à 16H00 à l'Office de la Propriété Intellectuelle

ARRETE:

ARTICLE 1.- Il est délivré à : GC CORPORATION
N° 76-1, Hasunuma-cho, Itabashi-ku, TOKYO(JAPON)

représenté(e)s par : CALLEWAERT Koen, BUREAU CALLEWAERT, Brusselsesteenweg, 108 - B 3090 OVERIJSE.

un brevet d'invention d'une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : COMPOSITION DE RESINE POUR MATIERE DE REGARNISSAGE MOLLE.

INVENTEUR(S) : Nakayama Mizuki, c/o GC Corporation, n°76-1, Hasunuma-cho, Itabashi-ku, Tokyo (JP); Kumagai Tomohiro, c/o GC Corporation n°76-1, Hasunuma-cho, Itabashi-ku, Tokyo (JP); Sekiguchi Toshihiro, c/o GC Corporation, n°76-1, Hasunuma-cho, Itabashi-ku Tokyo (JP)

PRIORITE(S) 27.09.00 JP JPA00293613

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Pour expédition certifiée conforme

L. WUYTS
CONSEILLER

Bruxelles, le 02 Septembre 2003
PAR DELEGATION SPECIALE :

L. WUYTS
CONSEILLER

5

COMPOSITION DE RESINE POUR MATIERE DE REGARNISSAGE MOLLE

10

ARRIERE-PLAN DE L'INVENTION

1. Domaine de l'invention

La présente invention concerne une composition
de résine pour matière de regarnissage molle, qui est
15 utilisée pour améliorer l'ajustement d'un appareil
dentaire, ou pour un conditionneur de muqueuse qui est
utilisé dans le soin dentaire de manière temporaire
jusqu'à ce que les affections d'un patient à qui l'on
monte un appareil dentaire, telles qu'une atrophie ou
20 une inflammation de la muqueuse orale, aient été
guéries.

2. Description de la technique classique :

En dentisterie, lorsqu'un appareil dentaire est
utilisé pendant une longue période de temps,
25 l'ajustement entre la base de l'appareil dentaire et
la muqueuse orale se détériore en raison de
l'absorption d'une crête alvéolaire ou analogue, et il
devient ainsi difficile de maintenir et de stabiliser
l'appareil dentaire. Dans ce cas, on essaie
30 généralement de restaurer l'ajustement entre la base
de l'appareil et la muqueuse orale par un traitement
dans lequel on élimine une couche de l'appareil
dentaire du côté de la muqueuse orale, puis on y
dépose en couche une matière de résine pour
35 regarnissage molle. Cette matière de regarnissage
molle est relativement molle et sert à compenser

l'élasticité perdue d'une muqueuse de crête alvéolaire et conférer des propriétés d'amortissement, diminuant ainsi le choc au cours de l'occlusion. Comme telles matières de regarnissage molles, on a largement
5 utilisé une composition de résine pour base d'appareil dentaire qui comprend une poudre d'un polymère tel que le polyméthacrylate de méthyle, et un liquide constitué d'un monomère tel que le méthacrylate de méthyle, contenant d'environ 10 à 90 % en poids d'un
10 plastifiant à base de phtalate.

De plus, lorsque le patient continue à utiliser l'appareil dentaire dans un état non ajusté, comme une force non uniforme est appliquée continuellement à la muqueuse sous la base de l'appareil dentaire, il se
15 produit une atrophie ou une inflammation de la muqueuse orale, qui a pour résultat une douleur au cours de l'occlusion. Dans ce cas, un regarnissage doit être effectué après que la muqueuse orale soit redevenue saine, ou, selon le cas, qu'un nouvel
20 appareil dentaire ait été préparé. Pendant ce temps, on tente de protéger et restaurer la muqueuse orale en déposant une couche de matière molle pour base d'appareil dentaire, appelée conditionneur de muqueuse sur la base de l'appareil dentaire du côté de la
25 muqueuse orale. Comme conditionneurs de muqueuse de ce type, on a largement utilisé une composition de résine pour matière de regarnissage molle qui comprend en général une poudre d'un polymère tel que le polyméthacrylate de méthyle et un liquide constitué
30 d'un plastifiant à base de phtalate contenant environ 8 à 20 % en poids d'éthanol.

De la manière décrite ci-dessus, les plastifiants à base de phtalate sont largement utilisés comme composants pour ramollir une matière
35 durcie dans les compositions de résine pour matière de regarnissage molle, comme les conditionneurs de

muqueuse. Cependant, au cours des dernières années, on a commencé à mettre en évidence le fait que les plastifiants à base de phtalate sont susceptibles d'avoir une influence sur les êtres vivants en interrompant les fonctions endocriniennes, et le développement d'une composition de résine pour matière de regarnissage molle progresse dans une direction visant à ce que l'utilisation de substances susceptibles d'avoir une influence sur les êtres vivants soit évitée autant que possible. Pour ces raisons, il a été demandé de développer une composition de résine molle pour matière de regarnissage, telle qu'un conditionneur de muqueuse, en utilisant un produit de substitution des phtalates.

15

RESUME DE L'INVENTION

Ainsi, la présente invention a pour but de proposer une composition de résine pour matière de regarnissage molle qui puisse associer les performances requises dans la technique classique, telles qu'une mollesse et un ajustement convenables entre une base d'appareil dentaire et la muqueuse orale, sans utiliser le plastifiant à base de phtalate qui a été jusqu'à présent largement utilisé dans la composition de résine pour matière de regarnissage molle.

25

Pour atteindre le but décrit ci-dessus, la Demanderesse a effectué des recherches étendues et intensives. En résultat, il a été trouvé qu'un plastifiant à base d'ester d'acide ne peut pas avoir d'influence sur les êtres vivants en interrompant les fonctions endocriniennes ; qu'une composition de résine pour matière de regarnissage molle comprenant ce plastifiant à base d'ester d'acide, un monomère de (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée, un initiateur de polymérisation et un polymère ou copolymère de (méth)acrylate, peuvent

30

35

présenter diverses performances identiques à celles de la résine pour matière de regarnissage molle de la technique classique ; le monomère de (méth)acrylate décrit ci-dessus, ayant au moins une double liaison insaturée, est polymérisé pour fixer le plastifiant à base d'ester d'acide et l'alcool éthylique dans le polymère, ce qui permet d'éviter l'élution de ces matières ; et la matière de résine ainsi formulée pour matière de regarnissage molle peut conférer l'avantage qu'elle ne durcit pas au bout d'un certain temps au cours de l'utilisation, ce qui conduit à la réalisation de la présente invention.

En particulier, la présente invention concerne une composition de résine pour matière de regarnissage molle comprenant (a) un monomère de (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée ; (b) un plastifiant à base d'ester d'acide ; (c) un polymère ou copolymère de (méth)acrylate ; et (d) un initiateur de polymérisation. Plus particulièrement, la présente invention concerne de préférence une composition de résine pour matière de regarnissage molle qui comprend 2 à 50 % en poids du monomère de (méth)acrylate (a) ayant au moins une double liaison insaturée ; 20 à 80 % en poids du plastifiant à base d'ester d'acide (b) ; 10 à 70 % en poids du polymère ou copolymère de (méth)acrylate (c) ; et 0,005 à 5 parties en poids, sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants (a), (b) et (c), de l'initiateur de polymérisation (d). Si on le désire, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention peut contenir en outre 1 à 15 % en poids de (e) un alcool éthylique. En outre, on préfère que le plastifiant à base d'ester d'acide (b) soit au moins un plastifiant choisi dans le groupe consistant en des esters d'acide trimellitique, des esters d'acides gras, des esters d'acide acétique, des

esters d'acide maléique, des esters d'acide fumarique et des esters d'acide citrique.

DESCRIPTION DES FORMES DE REALISATION PREFEREES

5 Les composants respectifs de la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention seront décrits ci-dessous en détail.

10 Le monomère de (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée en tant que composant (a) fait gonfler le polymère ou copolymère de (méth)acrylate en tant que constituant (c) pour conférer à la composition de résine pour matière de regarnissage molle une capacité d'utilisation convenable. De plus, le monomère (méth)acrylate ayant 15 au moins une double liaison insaturée en tant que composant (a) est polymérisé par l'initiateur de polymérisation en tant que composant (d), agissant ainsi pour empêcher le plastifiant à base d'ester d'acide en tant que composant (b) et l'alcool éthylique 20 en tant que composant (e), qui est mélangé, si on le désire, dans la composition de s'éluer de la composition après polymérisation.

Comme monomère de (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée en tant que composant 25 (a), on peut utiliser des monomères classiques qui ont été utilisés jusqu'à présent en dentisterie. Des exemples spécifiques comprennent des monomères de (méth)acrylate de méthyle, de (méth)acrylate d'éthyle, de (méth)acrylate d'isopropyle, de (méth)acrylate de 30 2-hydroxyéthyle, de (méth)acrylate de 3-hydroxypropyle, de 2-hydroxy-1,3-diméthacryloxypropane, de (méth)acrylate de t-butyle, de (méth)acrylate de n-butyle, de (méth)acrylate d'isobutyle, de (méth)acrylate de butoxyéthyle, de 35 (méth)acrylate d'hydroxypropyle, de (méth)acrylate de tétrahydrofurfuryle, de (méth)acrylate de glycidyle,

de (méth)acrylate de 2-méthoxyéthyle, de
(méth)acrylate de 2-éthylhexyle, de (méth)acrylate de
benzyle, de (méth)acrylate d'éthylèneglycol, de
di(méth)acrylate de diéthylèneglycol, de
5 di(méth)acrylate de 1,3-butylèneglycol, de
di(méth)acrylate de 1,4-butylèneglycol et de
di(méth)acrylate de polyoxytétraéthylèneglycol. Ces
monomères de (méth)acrylate ayant au moins une double
liaison insaturée peuvent être utilisés seuls ou en
10 mélange. La quantité du composant (a) à mélanger est
de préférence de 2 à 50 % en poids dans la composition
de résine pour matière de regarnissage molle. Lorsque
la quantité du monomère à mélanger est inférieure à
2 % en poids, le gonflement du polymère ou copolymère
15 de (méth)acrylate comme composant (c) est
insuffisante, et la capacité d'utilisation est ainsi
détériorée. D'autre part, lorsqu'elle dépasse 50 % en
poids, il est difficile de conférer une élasticité
(mollesse) convenable après durcissement.

20 Des exemples du plastifiant à base d'ester
d'acide en tant que composant (b) comprennent des
esters d'acide trimellitique, des esters d'acides
gras, des esters d'acide acétique, des esters d'acide
maléique, des esters d'acide fumarique et des esters
25 d'acide citrique. Plus particulièrement, les esters
d'acide trimellitique comprennent le trimellitate de
tri-2-éthylhexyle ; les esters d'acides gras
comprennent l'adipate de diméthyle, l'adipate de
diisobutyle, l'adipate de dibutyle, l'adipate de
30 diisobornyle, l'adipate de di-2-éthylhexyle, l'adipate
de diisodécyle, l'adipate de diéthylidiglycol,
l'adipate de dibutylidiglycol, l'azélate de di-2-
éthylhexyle, le sébacate de diméthyle, le sébacate de
dibutyle, le sébacate de di-2-éthylhexyle, le
35 ricinoléate de méthylacétyle et l'huile de soja
époxydée ; les esters d'acide acétique comprennent le

triacétate de glycéryle et l'acétate de 2-éthylhexyle ; les esters d'acide maléique comprennent le maléate de diéthyle, le maléate de dibutyle et le maléate de di-2-éthylhexyle ; les esters d'acide fumarique comprennent le fumarate de dibutyle et le fumarate de 2-éthylhexyle ; et les esters d'acide citrique comprennent le citrate de triméthyle, le citrate de triéthyle, le citrate de tripropyle, le citrate de tributyle, le citrate de triisopropyle et le citrate de triisobutyle. Parmi ces plastifiants à base d'ester d'acide en tant que composant (b), on préfère l'adipate de diisobutyle, l'adipate de diisobornyle, le sébacate de dibutyle et le citrate de tributyle. Ces plastifiants à base d'ester d'acide en tant que composant (b) peuvent être utilisés seuls ou en mélange, et constituent un plastifiant sûr, qui ne peut pas jouer le rôle d'interrupteur des fonctions endocriniennes chez des êtres vivants.

Dans la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention, on préfère que la quantité du plastifiant à base d'ester d'acide en tant que composant (b) soit mélangée à raison de 20 à 80 % en poids dans la composition de résine pour matière de regarnissage molle. Lorsque la quantité du plastifiant à base d'ester d'acide en tant que composant (b) à mélanger est inférieure à 20 % en poids, on n'atteint pas une mollesse suffisante après la polymérisation. D'autre part, lorsqu'elle dépasse 80 % en poids, la composition de résine pour matière de regarnissage molle tend à devenir trop molle. En outre, puisque le plastifiant à base d'ester d'acide comme composant (b), qui est utilisé pour la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention, agit pour faire gonfler convenablement le polymère ou copolymère de

(méthacrylate) en tant que composant (c), il possède cette caractéristique que la composition de résine résultante pour matière de regarnissage molle est à peine collante au cours de l'utilisation. Par conséquent, c'est un avantage que l'on puisse obtenir une capacité d'utilisation convenable même sans addition de paraffine liquide, etc., comme agent anti-adhérent, comme dans les compositions de résine pour matière de regarnissage molle de la technique classique.

Le polymère ou copolymère de (méth)acrylate en tant que composant (c) est gonflé par le monomère de (méth)acrylate en tant que composant (a), le plastifiant à base d'ester d'acide en tant que composant (b), et l'alcool éthylique en tant que composant (e), qui est mélangé, si on le désire, formant ainsi une partie de la matrice de base d'une matière de résine pour matière de regarnissage molle.

Comme polymères ou copolymères de (méth)acrylate en tant que composant (c), on utilise des polymères classiques qui ont été utilisés jusqu'à présent en dentisterie. Des exemples spécifiques comprennent des homopolymères ou copolymères de (méth)acrylate de méthyle, de (méth)acrylate d'éthyle, de (méth)acrylate de t-butyle, de (méth)acrylate de n-butyle, de (méth)acrylate de lauryle, de (méth)acrylate de dodécyle, de (méth)acrylate de stéaryle, de (méth)acrylate de cyclohexyle, de (méth)acrylate de benzyle, de (méth)acrylate d'isobornyle, de (méth)acrylate d'isopropyle, de (méth)acrylate de 2-hydroxyéthyle, de (méth)acrylate de 3-hydroxypropyle, de 2-hydroxy-1,3-diméthacryloxypropane, de (méth)acrylate d'isobutyle, de (méth)acrylate de butoxyéthyle, de (méth)acrylate d'hydroxypropyle, de (méth)acrylate de tétrahydrofurfuryle, de (méth)acrylate de glycidyle, de (méth)acrylate de 2-

méthoxyéthyle, de (méth)acrylate de 2-éthylhexyle, et de (méth)acrylate de benzyle ; et des copolymères (méth)acrylate/styrène.

5 Ces polymères peuvent être utilisés seuls ou en mélange. Parmi ces polymères ou copolymères, on préfère des homopolymères de (méth)acrylate, des copolymères méthacrylate/acrylate et des copolymères (méth)acrylate/styrène.

10 Le poids moléculaire convenable d'un tel polymère se situe dans l'intervalle de 100 000 à 1 500 000. Lorsque le poids moléculaire du polymère est inférieur à 100 000, la composition dans un état analogue à une pâte avec le polymère qui gonfle tend à être trop molle. D'autre part, lorsqu'il dépasse
15 1 500 000, la composition dans un état analogue à une pâte avec le polymère qui gonfle tend à être trop dure. En outre, la taille particulaire moyenne du polymère se situe dans l'intervalle de 2 à 150 μm . Lorsque la taille particulaire moyenne du polymère est
20 inférieure à 2 μm , la vitesse de gonflement est trop élevée, et le temps d'utilisation tend alors à être trop bref. D'autre part, lorsqu'elle dépasse 150 μm , l'ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale tend à devenir plus mauvais.

25 Comme initiateur de polymérisation en tant que composant (d), on peut utiliser n'importe lequel des initiateurs de polymérisation par la chaleur, initiateurs d'autopolymérisation et initiateurs de photopolymérisation qui ont été utilisés jusqu'à
30 présent.

Comme initiateurs de polymérisation par la chaleur, on utilise principalement des peroxydes organiques, des composés azoïques, et analogues. Comme peroxydes organiques, on préfère des peroxydes de
35 diacycle ayant un noyau aromatique et des peroxyesters qui sont considérés comme étant des esters d'acide

perbenzoïque. Des exemples efficaces comprennent le peroxyde de benzoyle, le peroxyde de 2,4-dichlorobenzoyle, le peroxyde de m-tolye, le peroxybenzoate de t-butyle, le peroxy-isophtalate de di-t-butyle et le 2,5-diméthyl-2,5-di(benzoylperoxy)-hexane. Comme composés azoïques, l'azobis-isobutyronitrile est utile. De plus, on peut utiliser des composés organo-métalliques tels que le tributylbore.

10 Comme initiateurs d'autopolymérisation, on peut citer des associations d'un peroxyde organique et d'une amine tertiaire aromatique. Lorsqu'on utilise un tel catalyseur, la composition est mélangée individuellement avec le peroxyde organique et avec
15 l'amine tertiaire aromatique, puis ces composants sont mélangés les uns aux autres au cours de l'utilisation de la composition de résine pour matière de regarnissage molle. Comme peroxydes organiques, on peut utiliser les mêmes peroxydes organiques que ceux
20 utilisés pour le type de polymérisation par la chaleur de la manière décrite ci-dessus. Comme amines tertiaires aromatiques, on préfère des amines tertiaires dans lesquelles un atome d'azote est substitué directement sur le groupe aromatique. Des
25 exemples efficaces comprennent la N,N-diméthyl-p-toluidine, le méthacrylate de N,N-diméthylaminoéthyle, la N,N-diméthylaniline, la N-méthyl-N-β-hydroxy-aniline, la N,N-di(β-hydroxyéthyl)-aniline, la N,N-di(β-hydroxyéthyl)-p-toluidine, la N,N-di(β-hydroxypropyl)-aniline, la N,N-di(β-hydroxypropyl)-p-toluidine, la triéthanolamine, le 4-diméthylaminobenzoate d'éthyle, le N,N-diméthylaminobenzoate de méthyle, le N,N-diméthylaminobenzoate d'éthyle et le
30 N,N-diméthylaminobenzoate d'isoamyle.

35 Comme initiateurs d'autopolymérisation, on peut ajouter les substances suivantes à celles décrites ci-

dessus. Des exemples comprennent des associations d'un dérivé de pyrimidinetrione, d'un composé organo-métallique et d'un composé organo-halogéné. On les utilise d'une manière telle qu'un composant est
5 mélangé avec le dérivé de pyrimidinetrione et le composé organo-métallique, alors que l'autre composant est mélangé avec le composé organo-halogéné. Comme dérivés de pyrimidinetrione, on préfère la 1-cyclohexyl-5-éthylpyrimidinetrione, la 1-benzyl-5-phénylpyrimidinetrione, la 5-butylpyrimidinetrione, la
10 5-phénylpyrimidinetrione, la 1,3-diméthylpyrimidinetrione et la 5-éthylpyrimidinetrione.

Comme composés organo-métalliques, on préfère l'acétylacétone-cuivre, le cuivre 4-cyclohexylbutyrique, l'acétate cuivrique, l'oléate de cuivre,
15 l'acétylacétone-manganèse, le naphténate de manganèse, le caprylate de manganèse, l'acétylacétone-cobalt, le naphténate de cobalt, l'acétylacétone-lithium, l'acétate de lithium, l'acétylacétone-zinc, le
20 naphténate de zinc, l'acétylacétone-nickel, l'acétate de nickel, l'acétylacétone-aluminium, l'acétylacétone-calcium, l'acétylacétone-chrome, l'acétylacétone-fer, le naphténate de sodium et des octoates de terres rares.

25 Comme composés organo-halogénés, on préfère le chlorure de dilauryldiméthylammonium, le chlorure de lauryldiméthylammonium, le chlorure de tétra-n-butylammonium, le chlorure de trioctylméthylammonium, le chlorure de benzyldiméthylcétylammonium et le
30 chlorure de benzyldiméthylstéarylammmonium.

Comme initiateur de polymérisation, on utilise généralement une association d'un agent de sensibilisation et d'un agent réducteur. Cet agent de sensibilisation et cet agent réducteur peuvent être
35 mélangés soit sous forme d'un seul composant, soit séparément dans différents composants. Des exemples de

l'agent de sensibilisation comprennent la camphoquinone, le benzile, le diacétyl, le benzyl-diméthylcétal, le benzyldiéthylcétal, le benzyl-di(2-méthoxyéthyl)cétal, le 4,4'-diméthylbenzyldiméthylcétal, l'antraquinone, la 1-chloroantraquinone, la 2-chloroantraquinone, la 1,2-benzantraquinone, la 1-hydroxyantraquinone, la 1-méthylantraquinone, la 2-éthylantraquinone, la 1-bromoantraquinone, la thioxanthone, la 2-isopropylthioxanthone, la 2-nitrothioxanthone, la 2-méthylthioxanthone, la 2,4-diméthylthioxanthone, la 2,4-diéthylthioxanthone, la 2,4-diisopropylthioxanthone, la 2-chloro-7-trifluorométhylthioxanthone, le thioxanthone-10,10-dioxyde, le thioxanthone-10-oxyde, l'éther méthylique de benzoïne, l'éther éthylique de benzoïne, l'éther isopropylique, l'éther isobutylique de benzoïne, la benzophénone, la bis(4-diméthylaminophényl)cétone, la 4,4'-bis-diéthylaminobenzophénone, des dérivés d'oxyde d'acylphosphine, et des composés contenant un groupe azide. Ces agents de sensibilisation peuvent être utilisés seuls ou en mélange. Comme agents réducteurs, on utilise en général les amines tertiaires décrites ci-dessus.

Dans la composition de résine pour matière de regarnissage molle utilisant un initiateur de photopolymérisation, la réaction de polymérisation est conduite sous irradiation par des rayonnements ultraviolets et des rayonnements de lumière visible. Comme source lumineuse, on utilise des lampes à vapeur de mercure à très haute, haute, moyenne ou basse pression, des lampes chimiques, des lampes à arc de carbone, des lampes à halogénures métalliques, des lampes fluorescentes, des lampes au tungstène, des lampes au xénon et des lasers à ions argon.

La quantité de l'initiateur de polymérisation en tant que composant (d) à mélanger est de préférence de

0,005 à 5 parties en poids, sur la base de 100 parties en poids de la composition totale. Lorsque la quantité de l'initiateur de polymérisation à mélanger est inférieure à 0,005 partie en poids, on ne peut obtenir
5 un effet suffisant. D'autre part, même lorsqu'elle dépasse 5 parties en poids, l'effet ne tend pas particulièrement à augmenter.

Afin d'obtenir une composition de résine pour matière de regarnissage molle qui soit plus molle,
10 telle qu'un conditionneur de muqueuse, tout en faisant gonfler suffisamment le polymère ou copolymère de (méth)acrylate en tant que composant (c), la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention doit en outre
15 contenir de 1 à 15 % en poids d'alcool éthylique en tant que composant (e). Lorsque la quantité d'alcool éthylique en tant que composant (e) est inférieure à 1 % en poids, le mélange ne produit aucun effet. D'autre part, lorsqu'elle dépasse 15 % en poids, la
20 stabilité de la composition se détériore.

De manière analogue à la matière de regarnissage molle, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention peut être utilisée sous diverses formes, telles que
25 sous une forme poudre-liquide, qui comprend un composant liquide contenant le (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée en tant que composant (a) et le plastifiant à base d'ester d'acide en tant que composant (b) comme composants principaux,
30 et, facultativement, de l'alcool éthylique en tant que composant (e), et un composant en poudre contenant le polymère ou copolymère de (méth)acrylate en tant que composant (c) ; sous une forme liquide ou pâteuse, comprenant comme composants principaux le
35 (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée en tant que composant (a), le plastifiant à

base d'ester d'acide en tant que composant (b), et le polymère ou copolymère de (méth)acrylate en tant que composant (c) comme composant principal et, facultativement, de l'alcool éthylique en tant que composant (e) ; et sous une forme composite des formes poudre-liquide et liquide (ou pâteuse) décrites ci-dessus. Dans chacune de ces formes, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention contient l'initiateur de polymérisation en tant que composant (d) en une quantité de 0,005 à 5 parties en poids, sur la base de 100 parties en poids de la composition totale. Le mode de mélange de l'initiateur de photopolymérisation en tant que composant (d) varie en fonction de son type, de la manière décrite ci-dessus.

En outre, il va sans dire que, pour autant que les caractéristiques de la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention ne soient pas détériorées, on peut utiliser divers additifs tels que ceux utilisés dans les matières pour résines dentaires classiques, comme des inhibiteurs de polymérisation, des agents colorants, des agents d'absorption de la lumière ultraviolette, des parfums ou des arômes, et des fongicides.

L'invention sera décrite ci-dessous plus en détail par référence aux exemples suivants, mais il ne doit pas être considéré que l'invention y est limitée.
(Profondeur de pénétration d'aiguille et rapport de profondeur de pénétration d'aiguille)

Conformément aux modes opératoires préconisés dans l'essai tel que défini dans la norme JIS T6519, intitulé "Short-term Lining Materials for Removable Dentures", on a évalué la profondeur de pénétration d'aiguille et le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille. Les résultats obtenus 120 minutes après le mélange (après achèvement de l'irradiation par la

lumière, dans le cas où l'on inclut un initiateur de photopolymérisation) et ceux obtenus 7 jours après le mélange sont résumés et présentés sur le tableau 1.

EXEMPLE 1

5 (Composant en poudre)

(c) polymère de méthacrylate d'éthyle : 100 % en poids

(d) 1-cyclohexyl-5-éthylpyrimidinetrione : 1 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus

10 (d) acétylacétone-cuivre : 0,001 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus.

(Composant liquide)

(a) méthacrylate de méthyle : 10 % en poids

15 (b) citrate de tributyle : 75 % en poids

(e) alcool éthylique : 15 % en poids

(d) chlorure de dilauryldiméthylammonium : 0,25 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

20 Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle. On a mélangé le composant liquide et le composant en poudre en une proportion de poudre par rapport au liquide de 2,2 g/1,8 g, et on les a évalués en ce qui concerne la profondeur de pénétration d'aiguille par le procédé décrit ci-dessus. En outre, pour évaluer la variation de mollesse au cours du temps, on a calculé le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille, valeur qui est obtenue en divisant la valeur de la profondeur de pénétration de l'aiguille 120 minutes après le mélange par la valeur de la profondeur de pénétration de l'aiguille 7 jours après le mélange.

30
35 Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme

conditionneur de muqueuse, la matière durcie a présenté une mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 2

5 (Composant en poudre)

(c) polymère de méthacrylate d'éthyle : 100 % en poids

(d) peroxyde de benzoyle : 0,8 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus

10 (Composant liquide)

(a) méthacrylate de t-butyle : 5 % en poids

(a) méthacrylate de méthyle : 5 % en poids

(b) sébacate de dibutyle : 80 % en poids

(e) alcool éthylique : 10 % en poids

15 (d) N,N-di-(β -hydroxyéthyl)-p-toluidine : 1,75 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle. On a mélangé le composant liquide et le composant en poudre en une proportion de poudre par rapport au liquide de 2,2 g/1,8 g, on a évalué la profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1.

Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme conditionneur de muqueuse, la matière durcie a présenté une mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 3

(Composant en poudre)

35 (c) copolymère méthacrylate d'éthyle/méthacrylate d'éthyle : 100 % en poids

(d) 1-cyclohexyl-5-éthylpyrimidinetrione : 1 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus

5 (d) acétylacétone-cuivre : 0,001 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus.

(Composant liquide)

(a) méthacrylate de butoxyéthyle : 20 % en poids

(b) adipate de diisobutyle : 80 % en poids

10 (d) chlorure de dilauryldiméthylammonium : 0,25 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

15 Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle. On a mélangé le composant liquide et le composant en poudre en une proportion de poudre par rapport au liquide de 2,2 g/1,8 g, on a évalué la profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu
20 le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1.

Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme matière de regarnissage, la matière durcie a présenté une
25 mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 4

(Composant en poudre)

(c) copolymère méthacrylate/styrène : 100 % en poids

30 (d) peroxyde de benzoyle : 1,0 partie en poids sur la base de 100 parties en poids du polymère décrit ci-dessus

(Composant liquide)

(a) méthacrylate de 2-méthoxyéthyle : 10 % en poids

35 (b) sébacate de dibutyle : 50 % en poids

(b) citrate de tributyle : 30 % en poids

(e) alcool éthylique : 10 % en poids.

Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle. On a mélangé le composant liquide et le composant en poudre en une proportion de poudre par rapport au liquide de 2,2 g/1,8 g, on a évalué la profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1.

Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme conditionneur de muqueuse, la matière durcie a présenté une mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 5

(Composant en poudre)

(c) polymère de méthacrylate d'éthyle : 100 % en poids

(Composant liquide)

(a) méthacrylate de butoxyéthyle : 15 % en poids

(b) adipate de diisobutyle : 80 % en poids

(e) alcool éthylique : 5 % en poids

(d) camphoquinone : 0,5 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus,

(d) 4-diméthylaminobenzoate d'éthyle : 1,5 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle. On a mélangé le composant liquide et le composant en poudre en une proportion de poudre par rapport au liquide de 2,2 g/1,8 g, et on a procédé à une irradiation avec de la lumière pendant 20 secondes au moyen d'un appareil d'irradiation de lumière

visible disponible dans le commerce (nom commercial :
LABOLIGHT LV-II, fabriqué par GC Corporation). Puis on
a évalué la profondeur de pénétration d'aiguille, et
on a obtenu le rapport de profondeur de pénétration
5 d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1.

Lorsque cette composition de résine pour matière
de regarnissage molle a été utilisée comme
conditionneur de muqueuse, la matière durcie a
présenté une mollesse convenable et un bon ajustement
10 de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 6

- (a) méthacrylate de butoxyéthyle : 16 % en poids
- (a) méthacrylate de méthyle : 15 % en poids
- (b) adipate de diisobutyle : 34 % en poids
- 15 (c) polymère de méthacrylate d'éthyle : 35 % en poids
- (d) camphoquinone : 0,5 partie en poids sur la base de
100 parties en poids de la somme des composants
liquides décrits ci-dessus
- (d) 4-diméthylaminobenzoate d'éthyle : 1,5 partie en
20 poids sur la base de 100 parties en poids de la somme
des composants liquides décrits ci-dessus.

Les composants respectifs ont été pesés et
mélangés les uns aux autres pour préparer une
composition de résine pour matière de regarnissage
25 molle de type à un seul liquide. On a irradié cette
composition de résine pour matière de regarnissage
molle de type à un seul liquide avec une lumière de la
même manière que dans l'Exemple 5, on a évalué la
profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu
30 le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de
la même manière que dans l'Exemple 1.

Lorsque cette composition de résine pour matière
de regarnissage molle a été utilisée comme matière de
regarnissage, la matière durcie a présenté une
35 mollesse convenable et un bon ajustement de la base de
l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 7

(Liquide A)

(a) diméthacrylate de 1,6-hexanediol : 5 % en poids

(b) citrate de tributyle : 75 % en poids

5 (c) copolymère de méthacrylate de méthyle/méthacrylate d'éthyle (5/5) : 20 % en poids

(d) peroxyde de benzoyle : 0,15 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

10 (Liquide B)

(a) diméthacrylate de polyoxytétraéthylèneglycol : 70 % en poids

(c) copolymère méthacrylate de méthyle/méthacrylate d'éthyle (5/5) : 30 % en poids

15 (d) N,N-diméthyl-p-toluidine : 0,3 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle de type à deux pâtes. Puis on mesuré la profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1, à l'exception que le rapport de mélange de la pâte A à la pâte B était de 4/7 (en poids).

20 Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme matière de regarnissage, la matière durcie a présenté une mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE 8

(Liquide A)

(a) diméthacrylate de 1,6-hexanediol : 5 % en poids

35 (b) citrate de tributyle : 75 % en poids

(c) copolymère de méthacrylate de méthyle/méthacrylate d'éthyle (5/5) : 20 % en poids

(d) camphoquinone : 0,5 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

(d) 4-diméthylaminobenzoate d'éthyle : 1,5 partie en poids sur la base de 100 parties en poids de la somme des composants liquides décrits ci-dessus.

(Liquide B)

(a) diméthacrylate de polyoxytétraéthylèneglycol : 70 % en poids

(c) copolymère méthacrylate de méthyle/méthacrylate d'éthyle (5/5) : 30 % en poids.

Les composants respectifs ont été pesés et mélangés les uns aux autres pour préparer une composition de résine pour matière de regarnissage molle de type à deux pâtes. Puis on mesuré la profondeur de pénétration d'aiguille, et on a obtenu le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1, à l'exception que le rapport de mélange de la pâte A à la pâte B était de 1/2 (en poids).

Lorsque cette composition de résine pour matière de regarnissage molle a été utilisée comme matière de regarnissage, la matière durcie a présenté une mollesse convenable et un bon ajustement de la base de l'appareil à la muqueuse orale.

EXEMPLE COMPARATIF 1

Lors de l'utilisation d'un conditionneur de muqueuse disponible dans le commerce (nom commercial : GC SOFT-LINER, fabriqué par GC Corporation) comme composition de résine pour matière de regarnissage molle de la technique classique, on a pesé un liquide et une poudre et on les a mélangés l'un à l'autre conformément aux instructions de la description. Puis on a mesuré la profondeur de pénétration d'aiguille et

le rapport de profondeur de pénétration d'aiguille de la même manière que dans l'Exemple 1.

TABLEAU 1

5		Profondeur de pénétration d'aiguille		
		120 minutes après irradiation avec de la lumière ou mélange	7 jours après irradiation avec de la lumière ou mélange	Rapport de profondeur de pénétration d'aiguille
		A (mm)	B (mm)	A/B
10	Exemple 1	0,63	0,60	1,05
	Exemple 2	0,60	0,56	1,07
	Exemple 3	0,51	0,47	1,09
	Exemple 4	0,60	0,57	1,05
	Exemple 5	0,64	0,61	1,05
	Exemple 6	0,50	0,48	1,04
	Exemple 7	0,53	0,50	1,06
15	Exemple 8	0,52	0,50	1,04
	Exemple Comparatif 1	0,53	0,30	1,77

Comme il apparaît clairement sur le tableau 1, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention présente une valeur de profondeur de pénétration d'aiguille démontrant la mollesse après durcissement au même niveau que dans le conditionneur de muqueuse de la technique classique. Il est ainsi confirmé qu'il est possible d'obtenir une matière de résine molle pour base d'appareil dentaire ayant une mollesse située au même niveau que dans celles de la technique classique, sans utiliser de plastifiants à base de phtalate. En outre, en raison du fait que les valeurs de profondeur de pénétration d'aiguille 7 jours après l'irradiation avec de la lumière ou après le mélange présentent une faible variation par rapport aux valeurs initiales, et que les rapports de profondeur de pénétration d'aiguille sont faibles, il peut être confirmé que la composition de résine molle pour base d'appareil

dentaire de la présente invention ne présente qu'une faible variation de mollesse au cours du temps, comparativement avec la matière de résine pour matière de regarnissage molle de la technique classique.

5 A la lumière de ce qui précède, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention peut atteindre les performances requises pour un regarnissage mou, telles qu'une mollesse et un ajustement convenables de la
10 base de l'appareil dentaire à la muqueuse orale, sans utiliser le plastifiant à base de phtalate qui est largement utilisé dans la composition de résine pour matière de regarnissage molle de la technique classique, pour laquelle il a été démontré qu'il
15 existe une possibilité d'influencer les êtres vivants par interruption des fonctions endocriniennes. En outre, en polymérisant le monomère de (méth)acrylate ayant au moins une double liaison insaturée, on peut éviter l'élution du plastifiant à base d'ester d'acide
20 et de l'alcool éthylique. Ainsi, la composition de résine pour matière de regarnissage molle conforme à la présente invention est supérieure pour la stabilité de ses caractéristiques physiques sur une longue période de temps. Par conséquent, la présente
25 invention est extrêmement précieuse pour sa contribution à la réparation dentaire.

Bien que la présente invention ait été décrite en détail et par référence à des formes de réalisation spécifiques de celle-ci, il apparaîtra clairement à
30 l'homme de l'art que divers changements et modifications peuvent y être apportés sans s'écarter de l'esprit et du cadre de la présente invention.

REVENDICATIONS

1. Composition de résine pour matière de regarnissage molle comprenant:
2 à 50 % en poids de (a) un monomère de (méth)acrylate ayant au moins
5 une double liaison insaturée;
20 à 80 % en poids de (b) un plastifiant à base d'ester d'acide, étant au
moins un plastifiant choisi dans le groupe consistant d'ester d'acide
trimellitique, d'esters d'acide gras, d'ester d'acide acétique et d'ester
d'acide citrique;
10 10 à 70 % en poids de (c) un polymère ou copolymère de (méth)acrylate ;
et
0,005 à 5 parties en poids, basé sur 100 parties en poids de la somme
totale des composants (a), (b) et (c), d'un initiateur de polymérisation (d).
2. Composition de résine pour matière de regarnissage molle suivant la
15 revendication 1, qui comprend en outre 1 à 15 % en poids d'alcool
éthylrique (e).
3. Composition de résine pour matière de regarnissage molle suivant la
revendication 1 ou 2, dans laquelle l'initiateur de polymérisation (d) est
un initiateur de polymérisation à chaud.
- 20 4. Composition de résine pour matière de regarnissage molle suivant la
revendication 1 ou 2, dans laquelle l'initiateur de polymérisation (d) est
un initiateur d'autopolymérisation.
5. Composition de résine pour matière de regarnissage molle suivant la
revendication 1 ou 2, dans laquelle l'initiateur de polymérisation (d) est
25 un initiateur de photopolymérisation.
6. Composition de résine pour matière de regarnissage molle suivant l'une
quelconque des revendications 1 à 5, dans laquelle le plastifiant (b) est
choisi dans le groupe consistant d'adipate de diisobutyle, d'adipate de
diisobornyl, de sébacate de dibutyl et de citrate de tributyle.

ABREGECOMPOSITION DE RESINE POUR MATIERE DE REGARNISSAGE
MOLLE

Il est proposé une composition de résine pour
5 matière de regarnissage molle qui peut atteindre les
performances requises d'une matière de regarnissage
molle pour base d'appareil dentaire, telles qu'une
mollesse et un ajustement convenables de la base de
10 l'appareil dentaire à la muqueuse orale, sans utiliser
le plastifiant à base de phtalate qui est largement
utilisé dans la composition de résine pour matière de
regarnissage molle de la technique classique, pour
laquelle il a été démontré qu'il existe une
15 possibilité d'influencer les êtres vivants par
interruption des fonctions endocriniennes. La
composition de résine molle pour base d'appareil
dentaire est réalisée à partir de (a) un monomère de
(méth)acrylate ayant au moins une double liaison
20 insaturée ; (b) un plastifiant à base d'ester
d'acide ; (c) un polymère ou copolymère de
(méth)acrylate ; et (d) un initiateur de
polymérisation.

25

30

35



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE
établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale

BO 8357
BE 200100606

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int.Cl.7)
X	US 5 037 473 A (ANTONUCCI JOSEPH M ET AL) 6 août 1991 (1991-08-06) * colonne 2, ligne 62 - colonne 3, ligne 20 * ----	1-3,6,7	A61K6/083
A	WO 99 53860 A (BONYF AG) 28 octobre 1999 (1999-10-28) * page 8, alinéa 1 * * page 10, alinéa 1 * ----	1,3	
A	EP 0 173 085 A (DENTSPLY INT INC) 5 mars 1986 (1986-03-05) * page 16, alinéa 2 * ----	1,3	
A	GB 2 347 679 A (GC KK) 13 septembre 2000 (2000-09-13) * page 12, alinéa 2 * -----	1	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int.Cl.7)
			A61K
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
5 décembre 2002		Cousins-Van Steen, G	
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant	
X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire			

**ANNEXE AU RAPPORT DE RECHERCHE
RELATIF A LA DEMANDE DE BREVET BELGE NO.**

BO 8357
BE 200100606

La présente annexe indique les membres de la famille de brevets relatifs aux documents brevets cités dans le rapport de recherche visé ci-dessus.
Lesdits membres sont contenus au fichier informatique de l'Office européen des brevets à la date du
Les renseignements fournis sont donnés à titre indicatif et n'engagent pas la responsabilité de l'Office européen des brevets.

05-12-2002

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)		Date de publication
US 5037473	A	06-08-1991	AUCUN		

WO 9953860	A	28-10-1999	WO	9953860 A1	28-10-1999
			JP	2002505610 T	19-02-2002

EP 0173085	A	05-03-1986	AU	587783 B2	31-08-1989
			AU	4562985 A	06-02-1986
			BR	8503585 A	29-04-1986
			CA	1312402 A1	05-01-1993
			DE	3587844 D1	14-07-1994
			DE	3587844 T2	02-02-1995
			EP	0173085 A2	05-03-1986
			JP	1965529 C	25-08-1995
			JP	6099537 B	07-12-1994
			JP	61095019 A	13-05-1986
			US	5177120 A	05-01-1993
			US	4813875 A	21-03-1989
			ZA	8708892 A	29-03-1989

GB 2347679	A	13-09-2000	JP	2000254152 A	19-09-2000
			DE	10011665 A1	14-09-2000
